



# 改質したポリカーボネートの強度特性と強化機構に関する研究

著者	安藤 誠人
巻	24
発行年	2014-03-25
学位授与番号	17104甲工第357号
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10228/5227">http://hdl.handle.net/10228/5227</a>

氏 名	安藤 誠人
学 位 の 種 類	博 士(工学)
学 位 記 番 号	工博甲第357号
学位授与の日付	平成26年3月25日
学位授与の条件	学位規則第4条第1項該当
学位論文題目	改質したポリカーボネートの強度特性と強化機構に関する研究
論文審査委員	主 査 教 授 野田 尚昭
	教 授 赤星 保浩
	教 授 山田 宏
	准教授 黒島 義人
	アステック入江 佐野 義一

## 学 位 論 文 内 容 の 要 旨

ポリカーボネート(PC)は透明性や耐衝撃性、耐燃性などを合わせ持つバランスの良い材料として、電気電子分野やOA分野のみならず、光学分野や自動車分野など様々な用途で使用されている。しかし、PCを使用する上では、強度・弾性率の絶対値の低さ、および低温域における衝撃強度の低下が実用上の問題点となっており、古くから材料改良の重要な研究・開発テーマとなっている。近年では、強度・弾性率を改良した材料として、マトリクスとなるPCと類似構造であるビスフェノールAを主骨格に持つエポキシ(EP)を界面改質材として添加したガラス繊維(GF)強化PCの開発が行われている。また、衝撃特性を改良した材料としては、シリコン化合物の一種でありシロキサン結合を持つ軟質なコモノマー成分であるポリジメチルシロキサン(PDMS)を共重合したPDMS-PCが開発されている。これらの材料に対しては、その強度特性に対する詳細な検証が不十分であり、また強化機構が明らかとなっていない。

本論文は全6章で構成されている。

まず、第1章では本研究の背景として、工業材料としてのPCの位置付けと実用上の問題点および材料改良の遍歴をまとめている。GF複合化によってより高い強度・弾性率を得るためには改質剤による界面強度向上の必要性があり、その改質による破壊過程変化を解明する必要性を説明している。また、衝撃特性の改良には共重合化が有効であるが、既存のアイゾット試験法などでは特性の理解が不十分であり、粘弾性特性を踏まえた評価方法である高速引張試験法による詳細な検証が必要であることを説明している。

第2章ではGFPCにおける樹脂/繊維界面および繊維端の微視的な損傷に着目し、EPを界面改質材として添加することによる樹脂/繊維界面の強度変化が破壊過程に及ぼす影響について考察している。その結果、GFPCでは引張負荷、疲労負荷共に、損傷は繊維端部の剥離を起点として

発生し、それに続く繊維界面への剥離進展を経て破壊に至ることを明らかにしている。また、GFPCにEPを添加することで大幅な界面せん断強度の向上効果が得られ、樹脂/繊維界面に沿った剥離の進展が抑制されることで引張及び疲労特性が大幅に向上することを見出している。そして、その理由がEPがGF外周に偏在しPCとの相互作用が向上するためであることを説明している。

第3章では、油圧によって試験速度を制御し任意速度での衝撃試験が可能な高速引張試験法を用いて、PDMS共重合化による衝撃特性の試験温度と速度に対する変化を詳細に検証している。その結果、PCは延性/ぜい性遷移によって大幅な破壊エネルギーの低下を起こすが、その遷移条件は試験温度と引張速度の双方に依存することを説明している。また、PDMS-PCは、低温・高速下においても延性破壊を保つことで破壊エネルギーの低下を抑制することを見出している。そして、その理由が共重合されたPDMSの有する良好な変形性に起因することを明確にしている。

第4章では、有限要素法を用いて高速引張試験時の動的応力集中とひずみ速度集中について解析している。その結果、動的応力集中係数とひずみ速度集中係数は、引張速度や最大変位によらず切欠き形状で決まり、すべての時間において常に一定値を示すことを見出している。また、ひずみ速度解析結果を用いることで第3章にて得られた衝撃特性に対して時間-温度換算則が適用可能であることを説明している。これにより、成形品の強度設計に活用可能な粘弾性を考慮したぜい性破壊指標が得られること示している。

第5章では静的強度である引張強度・弾性率と動的強度である衝撃強度と疲労強度を両立した材料として期待される、PDMS-PCをマトリクスとしたGF複合材料について、その強度特性と破壊過程を考察している。その結果、GFPDMS-PCはGFPCに対して衝撃特性の向上効果が得られ、特に低温・高速域における破壊エネルギー低下を抑制することを見出している。また、疲労寿命は低下するが、その理由がマトリクスのき裂進展抵抗の低下に起因し、GF端き裂が進展・連結し易いためであることを説明している。

最後の第6章では結論として、本研究論文全体をまとめている。

## 学 位 論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

ポリカーボネートは透明性や耐衝撃性、耐燃性などを合わせ持つバランスの良い材料として、電気電子分野やOA分野のみならず、光学分野や自動車分野など様々な用途で使用されて

いる。しかし、強度・弾性率の絶対値の低さ、および低温域における衝撃強度の低下が実用上の問題点となっており、その改質が重要な研究テーマとなっている。また、材料改質によってどのように引張強度・疲労強度ならびに衝撃強度が向上するのか、そのメカニズム解明が新材料開発のためにも期待されている。

本論文は全 6 章で構成されている。

第 1 章は、本研究の背景を説明している、工業材料としてのポリカーボネートの特徴と用途を述べるとともに、実用上の問題点やこれまでに報告された材料改良の研究をまとめている。まず、ガラス繊維の複合化によって高い強度・弾性率を得るためには改質剤による界面強度向上の必要性があり、その改質による破壊過程変化を解明する必要性を説明している。また、衝撃特性の改良には共重合化が有効であるが、既存のアイゾット試験法などでは特性の理解が不十分であり、粘弾性特性を踏まえた評価方法である高速引張試験法による詳細な検証が必要であることを説明している。

第 2 章は、複合化による引張強度と疲労強度の向上に関するものである。具体的には、ガラス繊維強化ポリカーボネートにおける樹脂/繊維界面および繊維端の微視的な損傷に着目し、エポキシを界面改質材として添加することによる樹脂/繊維界面の強度変化が破壊過程に及ぼす影響について考察している。その結果、引張破壊と疲労破壊の両方において、損傷は繊維端部の剥離を起点として発生し、それに続く繊維界面への剥離進展を経て破壊に至ることを明らかにしている。また、エポキシを添加することで大幅な界面せん断強度の向上効果が得られ、樹脂/繊維界面に沿った剥離の進展が抑制されることで引張及び疲労特性が大幅に向上することを見出している。そして、その理由がエポキシがガラス繊維外周に偏在しポリカーボネートとの相互作用が向上するためであることを説明している。

第 3 章は、樹脂改質による衝撃強度向上に関するものである。具体的には、任意速度の衝撃負荷が可能な高速引張試験法を用いて、ポリジメチルシロキサン共重合化による衝撃特性の向上を種々の試験温度と速度に対して詳細に検証している。まず、通常のポリカーボネートは延性/ぜい性遷移によって大幅な破壊エネルギーの低下を起こすが、その遷移条件は試験温度と引張速度の双方に依存することを説明している。一方、共重合化したポリカーボネートは、低温・高速下においても延性破壊を保つことで破壊エネルギーの低下を抑制することを見出している。そして、その理由が共重合された改質樹脂の良好な変形性に起因することを明確にしている。

第4章は、衝撃強度向上の研究に有用な高速引張試験法に関するものである。具体的には高速引張負荷時の切欠き試験片の動的応力集中係数とひずみ速度集中係数を有限要素法解析により考察している。その結果、これらが引張速度や最大変位によらず切欠き形状で決まることや、すべての時間において一定値を示すことを見出している。さらに、得られたひずみ速度の解析結果から第3章にて得られたポリカーボネートの衝撃特性に対して時間－温度換算則が適用できることを初めて示している。これにより、衝撃速度と温度の広範囲に有効な強度設計指標が得られるとしている。

第5章は、引張強度と衝撃強度の両立に関するものである。具体的には、第3章で考察したポリジメチルシロキサンを共重合化したポリカーボネートをマトリクスとして、それにガラス繊維を複合させた場合の強度特性と破壊過程を考察している。その結果、母材の改質によって衝撃特性の向上効果が得られ、特に低温・高速域における破壊エネルギー低下を抑制することを見出している。また、疲労寿命は低下するが、その理由がマトリクスのき裂進展抵抗の低下に起因し、ガラス繊維端き裂が進展・連結し易いためであることを説明している。

第6章は、本研究で得られた主要な結論をまとめている。

以上のように、本論文は改質したポリカーボネートの引張強度・疲労強度・衝撃強度等の特性を詳細に示した上でその改質メカニズムを明らかにしている。その中で、衝撃強度の評価法として、切欠形状の影響を定量化した高速試験法の提案は、強靱化を目指す新たな複合材料の評価と信頼性向上に貢献するものと期待される。よって本論文は機械工学上寄与するところが大きく、博士(工学)の学位論文に値するものと認められる。

なお、本論文に関し、審査委員並びに公聴会出席者からは、試験条件、試験片の作製方法、試験後の破面調査、き裂の進展のメカニズム、それらの材質間の差等について詳細な質問がなされたが、いずれも適切な回答がなされた。

以上により、論文調査及び最終試験の結果に基づき、審査委員会において慎重に審査した結果、本論文が、博士(工学)の学位に十分値するものであると判断した。